

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-59077

(43)公開日 平成5年(1993)3月9日

(51)Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
C 0 7 F 17/00		9160-4H		
7/00	A	8018-4H		
C 0 8 F 4/642	M F G	9053-4J		
10/00				

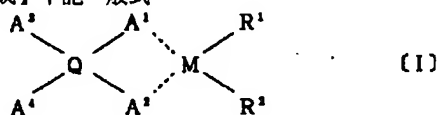
審査請求 未請求 請求項の数2(全7頁)

(21)出願番号	特願平3-215740	(71)出願人	000003126 三井東圧化学株式会社 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号
(22)出願日	平成3年(1991)8月28日	(72)発明者	井上 則英 神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井東圧化学株式会社内
		(72)発明者	神野 政弘 神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井東圧化学株式会社内
		(72)発明者	潮村 哲之助 神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井東圧化学株式会社内

(54)【発明の名称】 新規遷移金属化合物

(57)【要約】

【構成】下記一般式



(ここで、A¹ は4置換シクロペンタジエニル基、A² はフルオレニル基、または置換フルオレニル基を示す。A³、A⁴ は炭素数1～10のアルキル基、炭素数6～20のアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、ハロゲン化アリール基または酸素、窒素、硫黄、珪素などのヘテロ原子を含む炭化水素基または水素原子である。QはA¹、A²を連結する炭素数1～10の炭化水素基または珪素、ゲルマニウム、錫を含む炭化水素基である。また、A³、A⁴は互いに連結してA³、A⁴、Qの間で環構造を形成していてもよい。R¹、R²はハロゲン原子、水素原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数6～20のアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基を示す。Mはチタン、ジルコニウム、ハフニウムである。)で表される新規遷移

金属化合物。

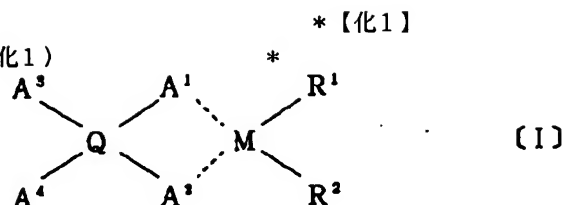
【効果】この新規遷移金属化合物を助触媒とともに使用することによりポリオレフィンを製造することができる。

1

2

【特許請求の範囲】

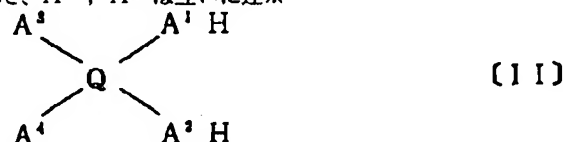
【請求項1】一般式〔I〕(化1)



(ここで、A¹ は4置換シクロペンタジエニル基、A² はフルオレニル基、または置換フルオレニル基を示す。A³, A⁴ は炭素数1~10までのアルキル基、炭素数6~20までのアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、ハロゲン化アリール基または酸素、窒素、硫黄、珪素などのヘテロ原子を含む炭化水素基または水素原子である。QはA¹, A² を連結する炭素数1~10までの炭化水素基または珪素、ゲルマニウム、錫を含む炭化水素基である。また、A³, A⁴ は互いに連※

※結していてA³, A⁴, Qの間で環構造を形成していてもよい。R¹, R² はハロゲン原子、水素原子、炭素数1~10までのアルキル基、炭素数6~20までのアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基を示す。Mはチタン、ジルコニウム、ハフニウムである。)で表される新規遷移金属化合物。

【請求項2】一般式〔II〕(化2)
〔化2〕



(ここで、A¹ は4置換シクロペンタジエニル基、A² はフルオレニル基、または置換フルオレニル基を示す。A³, A⁴ は炭素数1~10までのアルキル基、炭素数6~20までのアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、ハロゲン化アリール基または酸素、窒素、硫黄、珪素などのヘテロ原子を含む炭化水素基または水素原子である。QはA¹, A² を連結する炭素数1~10までの炭化水素基または珪素、ゲルマニウム、錫を含む炭化水素基である。また、A³, A⁴ は互いに連※

★1はハロゲンである)で表される遷移金属化合物とアルミノキサンからなる触媒の存在下エチレンおよび/またはα-オレフィンを重合または共重合させる方法が記載されている。

【0003】特開昭60-35008号公報には、少なくとも2種のメタロセン化合物とアルミノキサンからなる触媒を用いることにより幅広い分子量分布を有するポリ-α-オレフィンが製造できることが記載されている。

【0004】特開昭61-130314号公報には、立体的に固定したジルコン・キレート化合物およびアルミノキサンからなる触媒を用いてポリオレフィンを製造する方法が記載されている。また、同公報には、遷移金属化合物としてエチレン-ビス-(4, 5, 6, 7-テトラヒドロ-1-インデニル) ジルコニウムジクロリドを使用することにより、アイソタクチック度の高いポリオレフィンが製造する方法が記載されている。特開昭64-66124号公報には、珪素で架橋したシクロペンタジエニル化合物を配位子とする遷移金属化合物およびアルミノキサンを有効成分とする立体規則性オレフィン重合体製造用触媒が開示されている。

【0005】特開平2-41303号公報には、下記式 R'' (Cp R_n) (Cp R'_n) Me Q_k (但し、各 Cpはシクロペンタジエニル又は置換されたシクロペンタジエニル環であり；各R_n は同一又は異なっているもよく、1~20炭素原子を有するヒドロカルビル残基であり；各R'_n は同一又は異なっているもよく、1~20炭素原子を有するヒドロカルビル残基であり；R'' は触媒に立体剛性をもたらす Cp環の間の

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は新規な遷移金属化合物に関する。詳しくはある特定の配位子を有する遷移金属化合物に関する。本発明の化合物はエチレンまたはα-オレフィン重合用触媒成分として有用である。

【0002】

【従来の技術】シクロペンタジエニル基、インデニル基、フルオレニル基、またはそれらの誘導体を配位子とする遷移金属化合物、いわゆるメタロセン化合物は、助触媒、例えばアルミノキサンと共に使用してα-オレフィンを重合することによりポリ-α-オレフィンが製造できることが知られている。特開昭58-19309号公報には、

(シクロペンタジエニル)₂ Me R H a l

(ここで、Rはシクロペンタジエニル、C₁ ~ C₆ のアルキル、ハロゲンであり、Meは遷移金属であり、Ha★50

3

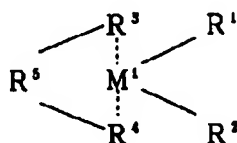
構造的架橋であり；Meは元素の周期律表の4b, 5b, 又は6b族の金属であり；各Qは1~20炭素原子を有するヒドロカルビル残基又はハロゲンであり； $0 \leq k \leq 3$ ； $0 \leq n \leq 4$ ；及び $1 \leq m \leq 4$ であり；及びR' aは(CpR' a)が(CpRn)と立体的に相違しているように選択される、によって表記されるシンジオタクチックポリオレフィンを製造するために使用されるメタロセン触媒。を一成分とする触媒を使用することによってシンジオタクティシティーの良好なポリ- α -オレフィンが製造できることが記載されている。

【0006】また、同公報には上記メタロセン化合物を2種以上使用することにより幅広い分子量分布を有するシンジオタクチックポリ- α -オレフィンが製造できることが記載されている。

【0007】特開平2-274703号公報には、下記式(化3)

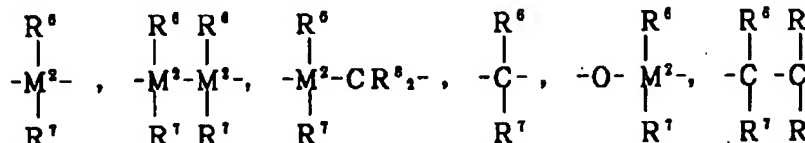
【0008】

【化3】



20

*



=BR⁶, =AlR⁶, -Ge-, -Sn-, -O-, -S-, =SO, =SO, =NR⁶, =CO, =PR⁶または=P(O)R⁶を意味し、その際R⁶、R⁷およびR⁸は互いに同じでも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1~10のアルキル基、炭素原子数1~10のフルオロアルキル基、炭素原子数6~10のフルオロアリール基、炭素原子数6~20のアリール基、炭素原子数1~10のアルコキシ基、炭素原子数2~10のアルケニル基、炭素原子数7~40のアリールアルキル基、炭素原子数8~40のアリールアルケニル基または炭素原子数7~40のアルキルアリール基を意味するかまたは、R⁶およびR⁷またはR⁶およびR⁸はそれぞれそれらの結合する原子と一緒に成って環を形成し、そしてM²は珪素、ゲルマニウムまたは錫である。)で表される遷移金属成分およびアルミノキサンからなる触媒の存在下にオレフィンを重合することにより高分子量のシンジオタクチックポリオレフィンを製造する方法が記載されている。

【0010】また、特開平2-274704号公報には、同様のハフニウム化合物を用いて高分子量のシンジオタクチックポリオレフィンを製造する方法が記載され※50

4

*〔式中、M¹はチタニウム、ジルコニウム、バナジウム、ニオブまたはタンタルであり、R¹およびR²は互いに同じでも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1~10のアルキル基、炭素原子数1~10のアルコキシ基、炭素原子数6~20のアリール基、炭素原子数6~20のアリールオキシ基、炭素原子数2~10のアルケニル基、炭素原子数7~40のアリールアルキル基、炭素原子数7~40のアルキルアリール基または炭素原子数8~40のアリールアルケニル基を意味し、R³およびR⁴は異なっており、中心原子M¹と一緒にサンドイッチ構造を形成し得る単核または多核炭化水素基を意味し、R⁵は(化4)

【0009】

【化4】

30※ている。このように、これらの触媒系ではメタロセン成分の構造を変えることにより異なった物性を有するポリオレフィンが製造できるため、種々の遷移金属化合物の合成が行われ、これらを用いて種々の物性を有するポリオレフィンが製造されている。

【0011】しかしながら、4置換シクロペンタジエンルおよびフルオレニル化合物が炭素または珪素などで架橋した配位子を有する遷移金属化合物はこれまで知られていない。さらに、このような化合物を触媒の一成分として用いてポリオレフィンを得た例は全くない。

【0012】

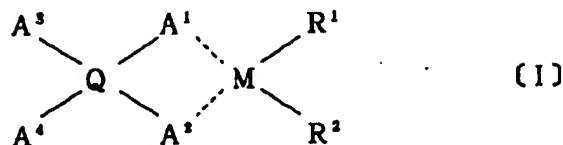
【発明が解決しようとする課題】本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、上述のような新規な遷移金属化合物を合成することに成功し、さらにこれらの遷移金属化合物を公知の助触媒と組み合わせて使用することによりポリオレフィンを効率よく製造できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0013】

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明は一般式〔I〕(化5)

【0014】

【化5】



(ここで、A¹ は4置換シクロペンタジエニル基、A² はフルオレニル基、または置換フルオレニル基を示す。A³, A⁴ は炭素数1~10のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、ハロゲン化アリール基または酸素、窒素、硫黄、珪素などのヘテロ原子を含む炭化水素基または水素原子である。QはA¹, A² を連結する炭素数1~10の炭化水素基または珪素、ゲルマニウム、錫を含む炭化水素基である。また、A³, A⁴ は互いに連結してA³, A⁴, Qの間で環構造を形成していてもよい。R*

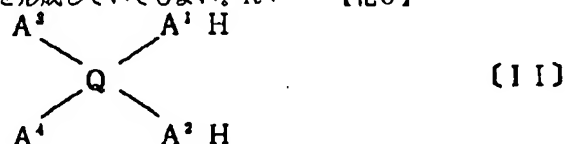
*¹, R² はハロゲン原子、水素原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基を示す。Mはチタン、ジルコニウム、ハフニウムである。)で表される新規遷移金属化合物を提供することにある。

【0015】さらに本発明は上記遷移金属化合物を合成するための中間体として、

一般式〔II〕(化6)

【0016】

【化6】



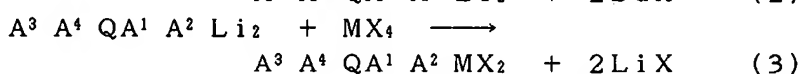
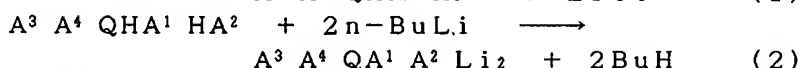
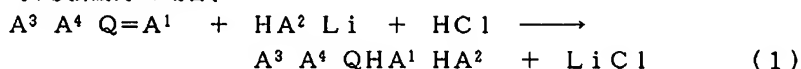
(ここで、A¹ は4置換シクロペンタジエニル基、A² はフルオレニル基、または置換フルオレニル基を示す。A³, A⁴ は炭素数1~10のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、ハロゲン化アリール基または酸素、窒素、硫黄、珪素などのヘテロ原子を含む炭化水素基または水素原子である。QはA¹, A² を連結する炭素数1~10の炭化水素基または珪素、ゲルマニウム、錫を含む炭化水素基である。また、A³, A⁴ は互いに連結してA³, A⁴, Qの間で環構造を形成していてもよい。Hは水素原子である。)で表される有機化合物を提供することにある。

【0017】一般式〔I〕および〔II〕中、A¹ は4置換シクロペンタジエニル基であり、好ましくはテトラメチルシクロペンタジエニル基である。A² はフルオレニル基、または置換フルオレニル基を示す。A² の具体例としては、フルオレニル基、2,7-ジtert-ブチルフルオレニル基などを挙げることができる。A³, A⁴ は炭素数1~10のアルキル基、炭素数6~20のアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基、ハロゲン化アリール基または酸素、窒素、硫黄、珪素などのヘテロ原子を含む炭化水素基または水素原子である。A※

※³, A⁴ の具体例としては、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、フェニル基、トリイリル基、フルオロフェニル基、メトキシフェニル基、ベンジル基などを挙げることができる。QはA¹, A² を連結する炭素数1~10の炭化水素基または珪素、ゲルマニウム、錫を含む炭化水素基であり、好ましくは炭素原子、珪素原子である。また、A³, A⁴ は互いに連結してA³, A⁴, Qの間で環構造を形成していてもよい。そのような場合のA³, A⁴, Qがなす基としては、例えばシクロペンチリデン基、シクロヘキシリデン基、シクロペンタン-1-シラー-1-イリデン基、テトラヒドロピラン-4-イリデン基などを挙げることができる。R¹, R² はハロゲン原子、水素原子、炭素数1~10のアルキル基、炭素数6~20までのアリール基、アルキルアリール基、アリールアルキル基を示し、好ましくは塩素原子、メチル基、ベンジル基である。Mはチタン、ジルコニウム、ハフニウムを示し、好ましくはジルコニウム、ハフニウムである。

【0018】本発明の一般式〔I〕で表される遷移金属化合物は、例えば下記のような経路により合成することができる。

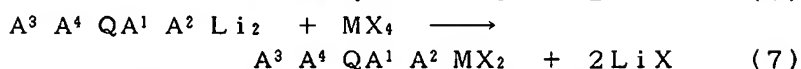
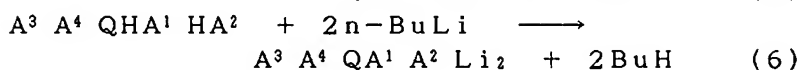
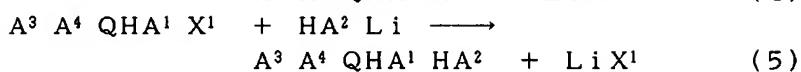
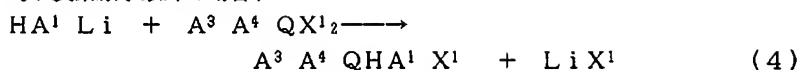
Qが炭素原子の場合、



7

8

Qが炭素原子以外の場合、



(ここでX, X¹ はハロゲン原子である。)さらに、上 10*ル) エタンなどが挙げられる。

記A³ A⁴ QA¹ A² MX₂ は、RLiやRMgX (Rはアルキル基、アリール基、アリールアルキル基である)などの周期律表1A族、2A族の有機金属化合物と反応させることにより、Xの少なくとも1つをRで置換した化合物を得ることができる。

【0019】反応式(1)で使用されるA³ A⁴ Q=A¹で表されるフルベン化合物は、例えば、J. Org. Chem., 33, 2368 (1968)、J. Organomet. Chem., 353, 93 (1984)などに記載されている方法を用いて合成することができる。反応式(1)、(2)および(3)で示される反応は特開平2-41303号公報、特開平2-274703号公報などに記載されている遷移金属化合物における反応条件に準じて行える。(4)、(5)、(6)、

(7)で示される反応については特開平2-75609号公報などに記載されている遷移金属化合物における反応条件に準じて行える。(1)反応式(1)、(2)または反応式(4)、(5)、(6)を行う際に使用する溶媒としてはテトラヒドロフラン、ジエチルエーテルなどのエーテル類が好ましく利用される。反応式(3)および(7)を行う際に使用する溶媒としては、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテルなどのエーテル類、クロロホルム、ジクロロメタンなどのハロゲン化炭化水素の他に、ペンタン、ヘキサン、ベンゼン、トルエンなどの脂肪族または芳香族炭化水素媒体も使用することができる。前記反応式(1)または(5)で得られる一般式(I)で表されるA³ A⁴ QHA¹ HA² は本発明における新規化合物であり、本発明の一般式(I)で表される遷移金属化合物を合成するための中間体として有用である。

【0020】一般式(II)で表される有機化合物の具体例としては、(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジメチルシラン、(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)ジメチルシラン、(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジフェニルシラン、(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)ジフェニルシラン、(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)エタン、(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)

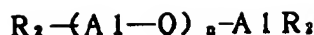
【0021】本発明の一般式(I)で表される遷移金属化合物の具体例としては例えば、ジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジメチル、ジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)ジルコニウムジメチル、ジフェニルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、ジフェニルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジメチル、ジフェニルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、ジフェニルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)ジルコニウムジメチル、エチリデン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、エチリデン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジメチル、エチリデン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、エチリデン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(2,7-ジメチル-9-フルオレニル)ジルコニウムジメチルなどの他に同様のハフニウム化合物を挙げることができる。

【0022】本発明の一般式(I)で表される新規遷移金属化合物は、メタロセン化合物とともに使用される公知の助触媒と組み合わせることによりオレフィン重合用触媒として使用することができる。そのような助触媒としては、公知のアルミノキサン類の他に特表平1-501950号公報、特表平1-502036号公報に記載されているような遷移金属カチオンを安定化することのできる化合物などを挙げることができる。

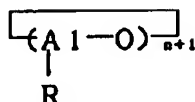
【0023】アルミノキサン類としては一般式(化7)

【0024】

【化7】



および/または



(ここでRは炭素数1~10の炭化水素基、nは2以上の整数を示す。)で表される化合物であり、特にRがメチル基であるメチルアルミノキサンでnが5以上、好ましくは10以上のものが利用される。上記アルミノキサン類には若干のアルキルアルミニウム化合物が混入していても差し支えない。

【0025】上記遷移金属化合物に対するアルミノキサンの使用割合としては10~100000モル倍、通常50~10000モル倍である。

【0026】本発明における遷移金属触媒化合物および/または助触媒は、そのままでSiO₂、Al₂O₃、MgCl₂などのチーグラ型触媒を担持する公知の担体上に担持して使用してもよい。

【0027】本発明の遷移金属触媒化合物を用いた重合方法および重合条件については特に制限はなくα-オレフィンの重合で行われる公知の方法が用いられ、不活性炭化水素媒体を用いる溶媒重合、または実質的に不活性炭化水素媒体の存在しない塊状重合、気相重合も利用でき、重合温度としては-100~200℃、重合圧力としては常圧~100kg/cm²で行うのが一般的である。好ましくは-50~100℃、常圧~50kg/cm²である。

【0028】触媒の処理および/または重合に際し使用される炭化水素媒体としては例えばブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、ノナン、デカン、シクロペンタン、シクロヘキサンなどの飽和炭化水素の他に、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素も使用することができる。

【0029】重合に際し使用されるオレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセンなどの炭素数3~25のα-オレフィンおよびエチレンを挙げることができる。

【0030】本発明の遷移金属触媒化合物は、オレフィンの単独重合のみならず、例えばプロピレンとエチレン、プロピレンと1-ブテンなどの炭素数2~25程度のエチレンまたはα-オレフィンの共重合体を製造する際にも利用できる。

*【0031】

【実施例】以下に本発明を実施例によって具体的に説明する。

実施例1

〔遷移金属化合物の合成〕

テトラメチルシクロペンタジエニルフルオレニルジメチルシラン

充分窒素置換した500mlのガラス製フラスコに、J. Am. Chem. Soc., 112, 9558(1988)に記載されている方法により合成したテトラメチルシクロペンタジエニルジメチルクロロシラン7.3gをフルオレニルナトリウム34mmolを含むTHF溶液150mlに滴下した。室温で24時間反応させた後、沈澱を濾別、濾液を減圧留去することにより10.8gのテトラメチルシクロペンタジエニルフルオレニルジメチルシランを得た。この化合物の物性値を下に示す。

【0032】¹H-NMRスペクトル(90MHz, CDCl₃ 溶液)(ppm)

7.9~7.2(m, 8H), 4.13(s, 1H), 3.25(s, 1H), 1.98(s, 6H), 1.85(s, 6H), -0.31(s, 6H)

ジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド

充分窒素置換した300mlのガラス製フラスコに、上記合成したテトラメチルシクロペンタジエニルフルオレニルジメチルシラン5.0gを装入しTHF100mlに溶解した。この溶液にn-BuLi30mmolを滴下し、室温で一晩反応させた後溶媒を減圧留去し、得られた固体をペンタン洗浄することによりジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジリチウムを得た。このジリチウム塩を-78℃で200mlの塩化メチレンに溶解し、さらに四塩化ジルコニウム3.4gを加えた。12時間かけて室温までゆっくり昇温した後、反応液を濾過、濾液を濃縮することにより生成した沈澱を濾過、乾燥することにより黄色粉末のジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド1.3gを得た。この化合物の物性値を下に示す。

【0033】¹H-NMRスペクトル(90MHz, C

11

DCl_3 溶液) (ppm)

8.2~7.1 (m, 8H), 1.98 (s, 6H),
1.87 (s, 6H), 1.31 (s, 6H)

〔重合検定〕充分窒素置換した1.5lのオートクレーブにプロピレン0.75lを装入し、次いで上記合成したジメチルシリレン(テトラメチルシクロペンタジエニル)(9-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド3.0mgおよび東ソー・アクゾ(株)製メチルアルミノキサン(重合度17.7)1.0gを加え、40℃で1時

12

間重合した。少量のメタノールを系内に導入することにより重合を停止し、未反応のプロピレンをパージし、さらに大量のメタノール塩酸で洗浄、乾燥することにより8.0gのポリプロピレンを得た。

【0034】

【発明の効果】この新規遷移金属化合物を助触媒とともに使用することによりポリオレフィンを製造することができる。

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-059077

(43)Date of publication of application : 09.03.1993

(51)Int.Cl.

C07F 17/00
C07F 7/00
C08F 4/642
C08F 10/00

(21)Application number : 03-215740

(71)Applicant : MITSUI TOATSU CHEM INC

(22)Date of filing : 28.08.1991

(72)Inventor : INOUE NORIHIDE

JINNO MASAHIRO

SHIOMURA TETSUNOSUKE

(54) NEW TRANSITION METAL COMPOUND

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide the subject new compound useful as a component of a catalyst for the polymerization of ethylene and α -olefin.

CONSTITUTION: The compound of formula I [A1 is tetrasubstituted cyclopentadienyl; A2 is (substituted) fluorenyl; A3 and A4 are 1-10C alkyl, 6-20C aryl, alkylaryl, arylalkyl, halogenated aryl, H, etc.; Q is 1-10C hydrocarbon group, etc., binding A1 and A2 together; R1 and R2 are halogen, 6-20C aryl, alkylaryl, etc.; M is Ti, Zr or Hf], e.g. dimethylsilylene (tetramethylcyclopentadienyl) (9-fluorenyl)zirconium dichloride. The compound of formula I wherein Q is C can be produced by reacting a fulvene compound of formula A3A4Q=A1 with a compound of formula HA2Li and HCl, reacting the produced compound of formula A3A4QHA1HA2 with n-BuLi to obtain a compound of formula II and reacting the compound with a compound of formula MX4.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

10.08.1998

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 23.10.2001

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]